

OA80-01  
PR

OPTICS - PATENTS

01/06/09 10:09:30  
PAGE: 1

RENEWAL DETAILS

PUBLICATION NUMBER EP1012896

PROPRIETOR(S)

FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH GMBH, 52425 Jülich, Federal Republic of  
Germany

DATE FILED 10.08.1998

DATE GRANTED 17.10.2001

DATE NEXT RENEWAL DUE 10.08.2004

DATE NOT IN FORCE 10.08.2004

DATE OF LAST RENEWAL 21.07.2003

YEAR OF LAST RENEWAL 06

STATUS

CEASED

\*\*\*\* END OF REPORT \*\*\*\*

REGISTER ENTRY FOR EP1012896

European Application No EP98948752.5 filing date 10.08.1998

Application in German

Priority claimed:

11.08.1997 in Federal Republic of Germany - doc: 19734634

PCT EUROPEAN PHASE

PCT Application PCT/DE1998/002282 Publication No WO1999/008336 on  
18.02.1999

Designated States DE FR GB NL

Title FUEL CELL WITH DIRECT TRANSFORMATION OF METHANOL INTO CURRENT

Applicant/Proprietor

FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH GMBH, Wilhelm-Johnen-Strasse, 52425 Jülich,  
Federal Republic of Germany [ADP No. 57807851001]

Inventors

JIRI DIVISEK, Gutenbergstrasse 34, D-52428 Jülich, Federal Republic of  
Germany [ADP No. 66301037001]

HENDRIK DOHLE, Cäcilienstrasse 53 a, D-52249 Eschweiler, Federal Republic  
of Germany [ADP No. 68291954001]

VOLKER PEINECKE, Plochinger Strasse 28, D-73730 Esslingen, Federal  
Republic of Germany [ADP No. 68291962001]

HANS-FRIEDRICH OETJEN, Ch.-J.-Matzerath-Strasse 4, D-52441 Linnich,  
Federal Republic of Germany [ADP No. 69015907001]

ILONA BUSENBENDER, Albrecht-Dürer-Strasse 41, D-65462  
Ginsheim-Gustavsburg, Federal Republic of Germany [ADP No. 69015915001]

HEINZ SCHMITZ, Buchenweg 7, D-52428 Jülich, Federal Republic of Germany  
[ADP No. 69015923001]

Classified to  
H01M

Address for Service

FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH GMBH, Wilhelm-Johnen-Strasse, 52425 Jülich,  
Federal Republic of Germany [ADP No. 57807851001]

Publication No EP1012896 dated 28.06.2000 and published/granted by EPO  
17.10.2001.

Publication in German

Examination requested 23.02.2000

Patent Granted with effect from 17.10.2001 (Section 25(1)) with title FUEL  
CELL WITH DIRECT TRANSFORMATION OF METHANOL INTO CURRENT. Translation  
filed 11.01.2002

---

- 14.09.2001 EPO: Search report published on 29.04.1999  
Entry Type 25.11 Staff ID. RD06 Auth ID. EPT
- 15.01.2002 Patent Granted with effect from 17.10.2001 (Section 25(1)) with  
title FUEL CELL WITH DIRECT TRANSFORMATION OF METHANOL INTO  
CURRENT. Translation filed 11.01.2002  
Entry Type 2.2 Staff ID. PJ1 Auth ID. F54
- 16.01.2002 Notification of change of Address For Service name and address of  
FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH GMBH, Wilhelm-Johnen-Strasse, 52425  
Jülich, Federal Republic of Germany [ADP No. 57807851001]  
to  
MEWBURN ELLIS, York House, 23 Kingsway, LONDON, WC2B 6HP, United  
Kingdom [ADP No. 00000109006]  
dated 21.12.2001. Official evidence filed on EP NEW APPS  
Entry Type 7.1 Staff ID. PHEN Auth ID. F51
- 01.04.2004 Name and address maintenance action has taken place and the address  
for Address For Service is  
MEWBURN ELLIS LLP, York House, 23 Kingsway, LONDON, WC2B 6HP,  
United Kingdom [ADP No. 08836884001]  
this change is effective from 01.04.2004  
Entry Type 7.5 Staff ID. AR Auth ID. NA20
- 09.03.2005 Patent ceased on 10.08.2004  
Entry Type 12.1 Staff ID. RM86 Auth ID. RM86

\*\*\*\* END OF REGISTER ENTRY \*\*\*\*

The Comptroller  
The Patent Office

**VERIFICATION OF TRANSLATION**

---

**Re: European Patent Application no. 98 948 752.5**

I, **Dr E.F.N. Jephcott**  
**3 Martindale Close**  
**Canterbury**  
**Kent**  
**CT1 3LT**

hereby declare that I am the translator of the documents  
attached and certify that the following is a true translation  
to the best of my knowledge and belief.

Signature of translator ..... **E.F.N. Jephcott** .....

Dated this ...9th.....day of...January.....2002

The invention relates to a fuel cell.

5 A fuel cell, known, for example, from DE 42 41 150 C1, comprises a cathode, an electrolyte and an anode. An oxidising agent, e.g. air, is fed to the cathode and a fuel, e.g. hydrogen, is fed to the anode. The cathode and anode of a fuel cell generally have porosity passing through them, so that the two operating materials, oxidising agent and fuel, can be fed to the active areas of the electrodes and the  
10 product water can be conducted away.

So-called PEM fuel cells exist in which proton-conducting membranes are used as the electrolyte. The operating temperatures are below 130°C in order not to destroy the nafion membrane usually used.

15

Hydrogen ions (protons) form on the anode of a PEM fuel cell by means of a catalyst in the presence of the fuel. The hydrogen ions pass through the electrolyte and combine on the cathode side with the oxygen derived from the oxidising agent to form water. In this process electrons are released, thus  
20 generating electrical energy.

If a fuel cell has an alkaline electrolyte the oxidising agent is converted into  $\text{OH}^-$  ions.  $\text{OH}^-$  ions then pass through the electrolyte and thereafter combine with supplied hydrogen to form water. In this process the hydrogen is likewise  
25 oxidised. In this case nickel is regularly provided as the catalyst. In this process electrical energy is released.

From DE 195 43 759 fuels such as methane or methanol are known to be first reformed externally (i.e. outside the fuel cell by means of a reforming reactor) or  
30 internally on the anode of the fuel cell. The hydrogen required for the fuel cell is produced by the reforming.

The external reforming reaction is effected, for example, by copper/zinc alloys.

5 A disadvantage of the external reforming process is its very high complexity in terms of apparatus and control technology. In addition, an external reformer is unable to produce pure hydrogen. Complex hydrogen purification is required. The energy required for the endothermic reforming reaction must be provided separately. The system suffers from high inertia and is therefore unsuitable for dynamic or intermittent operation.

10

The internal reforming process known from DE 195 43 759 is carried out directly inside the fuel cell.

15 A disadvantage of this process is that it is possible only at very high operating temperatures.

In the so-called direct methanol fuel cell known, for example, from EP 0 068 508 B1, methanol is oxidised electrochemically directly on the anode to form protons and CO<sub>2</sub>. Operating temperatures below 130°C are possible.

20

Disadvantageously, the oxidation of methanol takes place only very slowly at operating temperatures below 130°C. Low efficiency is the result. In addition, methanol can pass through the electrolyte polymers (e.g. nafion) commonly used. The methanol which has passed through the electrolyte no longer  
25 contributes to energy generation. Furthermore, the cathodic reaction, i.e. the reduction of oxygen, is inhibited by the methanol which has passed through the electrolyte. Performance losses occur.

30

In the direct methanol fuel cell care must also be taken to ensure that the electrolyte does not react chemically with methanol. For this reason phosphoric acid, for example, is excluded as the electrolyte material.

A copper/zinc alloy cannot generally be used in the direct methanol fuel cell because this alloy is not electrochemically active and generally is not compatible with the material of the electrolyte.

5

It is the object of the invention to create a fuel cell in which a reforming of the fuel can be carried out directly on the anode of the fuel cell in an improved fashion as compared to the above-mentioned state of the art.

- 10 The object of the invention is met by the fuel cell according to the main claim. Advantageous embodiments emerge from the subsidiary claims.

A barrier layer is located on the anode side of the fuel cell. With the exception of hydrogen, the barrier layer separates the fuels from the electrolyte. It is  
15 (practically) impermeable to fuels such as methanol. The barrier layer is permeable to atomic or molecular hydrogen.

The barrier layer consists, for example, of an electronically conductive hybrid forming agent, and in particular a metallic hybrid forming agent. Palladium or  
20 palladium/silver alloys represent suitable metallic hybrid forming agents in order to arrive at a barrier layer according to the main claim.

In addition, a catalyst is provided which oxidises the hydrogen passing through the barrier layer. In the case of a proton-permeable membrane the hydrogen is  
25 oxidised to form protons. In the case of an alkaline electrolyte the hydrogen is oxidised and combines with  $\text{OH}^-$  ions to form water.

If the anode comprises, for example, a noble metal such as platinum or a noble metal alloy and if the electrolyte is proton-conductive, the hydrogen is oxidised to  
30 protons through catalysis. In this case, therefore, the anode represents a catalyst which oxidises the hydrogen passing through the barrier layer to form protons.

In the device according to the claims fuels such as methanol are separated from the electrolyte layer. The above-mentioned performance losses occurring in the case of direct methanol fuel cells (caused by fuel losses and the inhibited cathodic reaction) are therefore avoided. Chemical reactions between the fuel and the electrolyte material are prevented. Consequently, the electrolyte layer, unlike the case with direct methanol fuel cells, can consist of the usual solids such as nafion or liquids such as phosphoric acid. In addition, the electrolyte layer can be alkaline.

In a further embodiment of the invention the barrier layer is electrically conductive. It can therefore take over anode functions.

An agent for reforming the fuel is preferably located directly adjacent to the barrier layer. Said agent can be configured as an appropriately catalytically active layer applied to the barrier layer. This layer can be applied e.g. to a highly porous hybrid forming agent so that the pore walls are coated with reforming catalyst. Through the close spatial connection to the hybrid forming agent hydrogen is withdrawn directly from the reaction zone. The reforming reaction is thereby accelerated.

The catalytically active layer is referred to hereinafter as the reforming layer. The reforming layer can consist of a copper/zinc alloy, platinum or a platinum/ruthenium alloy. Pt or Pt/Ru then represent a catalyst for the chemical reaction.

The reforming layer is applied as thinly as possible to its carrier material (which at the same time should be the barrier layer material), so that the hydrogen can diffuse through it as quickly as possible to the barrier layer material.



The hydrogen produced by the reforming process escapes through the barrier layer. It is, so to speak, "sucked away". Because equilibrium cannot therefore be established in the reforming reaction, the reforming reaction is accelerated in the direction of the products. Efficiency is thereby improved. The reaction temperature can be lowered.

The acceleration effect with respect to the reforming process and the associated reduction in temperature are at a maximum if the barrier layer is also the anode and the catalyst for the reforming reaction is applied directly to the barrier layer.

The barrier layer advantageously has high solvent power for hydrogen. The hydrogen produced during reforming is thus drawn away especially quickly. Palladium alloys, e.g. Pd-Ag alloys, in particular those with an atomic ratio Pd:Ag = 75:25, have high solvent power for hydrogen as called for by the invention.

The barrier layer advantageously has a roughened surface. Firstly, the effective surface for the reforming reaction on the side of the reforming layer is enlarged through high roughness. Secondly, on the side of the electrolyte the desorption power and the oxidation of the dissolved hydrogen are improved. In addition, the roughness improves the adhesion both of an ion-conductive polymer and of the exterior reforming layer.

The roughness can be achieved e.g. by electrochemical precipitation of palladium on a thin Pd-Ag film.

The reforming layer is regularly porous in order to enlarge the catalytically active surface. In addition, through the pores the hydrogen produced penetrates or passes through the barrier layer.

Fig. 1 makes clear the structure of the fuel cell according to the invention. Said fuel cell consists of a layer system with a porous cathode layer 1, a proton-

conductive electrolyte layer 2, an anode 3, a barrier layer 4 and a reforming layer 5. Here the anode also represents the catalyst according to the claims, which catalyst oxidises the hydrogen passing through the barrier layer to form protons.

- 5  $\text{CH}_3\text{OH}$  reaches the reforming layer 5 together with  $\text{H}_2\text{O}$ . The reforming reaction then takes place on the reforming layer 5. The resulting hydrogen passes through the reforming layer 5 and diffuses through the barrier layer 4 to the anode 3.  $\text{CO}_2$  is produced as a waste product and escapes. The hydrogen is oxidised to protons on the anode 3. The protons pass through the electrolyte
- 10 layer 2 and thus reach the cathode 1. Oxygen is fed to the cathode 1 and combines with the protons to form water. An electrical current is thereby generated.

## **Claims**

1. Fuel cell comprising anode, electrolyte and cathode together with a barrier layer, with the features:  
5  
a) the barrier layer is on the anode side of the fuel cell,  
b) the barrier layer separates fuels from the electrolyte,  
c) the barrier layer is permeable to atomic or molecular hydrogen,  
10 d) the barrier layer has, only on the side facing away from the electrolyte, a reforming catalyst from the group of copper/zinc alloy, platinum or platinum/ruthenium alloy to reform the fuel.
2. Fuel cell according to the preceding claim, characterised in that the barrier layer is also the anode.  
15
3. Application of the fuel cell according to one of the preceding claims for direct transformation of methanol into current.

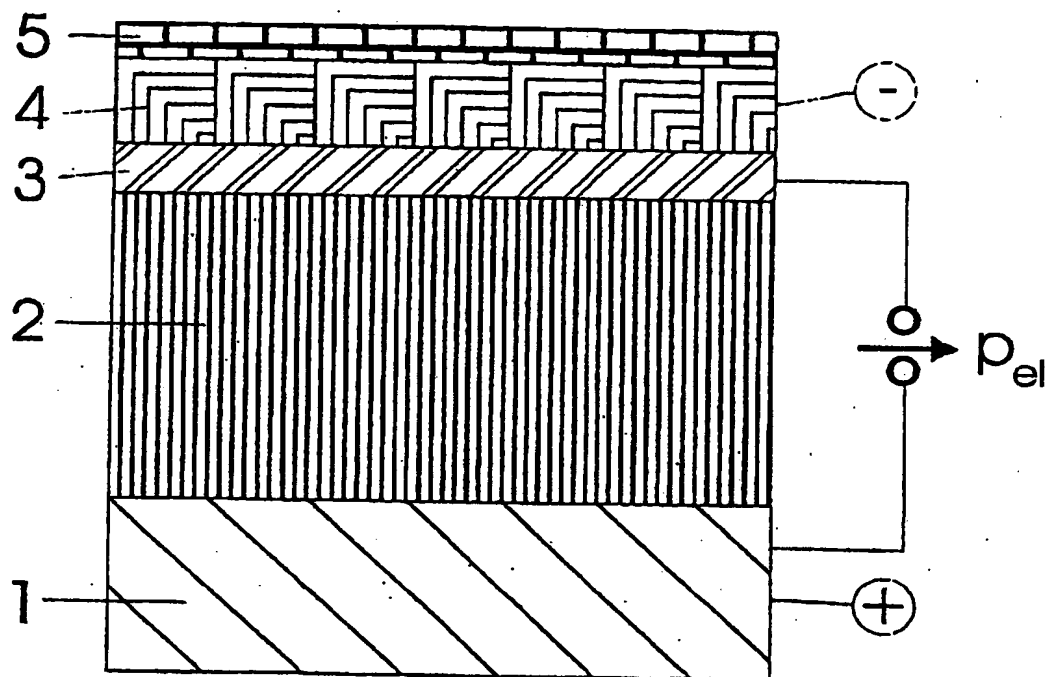


Fig. 1

(19)



Europäisches Patentamt  
European Patent Office  
Office européen des brevets



(11)

**EP 1 012 896 B1**

(12)

## EUROPÄISCHE PATENTSCHRIFT

(45) Veröffentlichungstag und Bekanntmachung des  
Hinweises auf die Patenterteilung:  
**17.10.2001 Patentblatt 2001/42**

(51) Int Cl.7: **H01M 8/00**

(86) Internationale Anmeldenummer:  
**PCT/DE98/02282**

(21) Anmeldenummer: **98948752.5**

(87) Internationale Veröffentlichungsnummer:  
**WO 99/08336 (18.02.1999 Gazette 1999/07)**

(22) Anmeldetag: **10.08.1998**

### (54) **BRENNSTOFFZELLE ZUR DIREKTEN VERSTROMUNG VON METHANOL**

**FUEL CELL WITH DIRECT TRANSFORMATION OF METHANOL INTO CURRENT**

**PILE A COMBUSTIBLE A TRANSFORMATION DIRECTE DU METHANOL EN COURANT**

(84) Benannte Vertragsstaaten:  
**DE FR GB NL**

(30) Priorität: **11.08.1997 DE 19734634**

(43) Veröffentlichungstag der Anmeldung:  
**28.06.2000 Patentblatt 2000/26**

(73) Patentinhaber: **FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH  
GMBH  
52425 Jülich (DE)**

(72) Erfinder:

- **DIVISEK, Jiri  
D-52428 Jülich (DE)**
- **DOHLE, Hendrik  
D-52249 Eschweiler (DE)**
- **PEINECKE, Volker  
D-73730 Esslingen (DE)**

- **OETJEN, Hans-Friedrich  
D-52441 Linnich (DE)**
- **BUSENBENDER, Ilona  
D-65462 Ginsheim-Gustavsburg (DE)**
- **SCHMITZ, Heinz  
D-52428 Jülich (DE)**

(56) Entgegenhaltungen:  
**DE-A- 19 646 486 DE-A- 19 646 487**  
**DE-B- 1 496 145**

- **DATABASE WPI Section Ch, Week 9707 Derwent  
Publications Ltd., London, GB; Class L03, AN  
97-074676 XP002900347 & JP 08 321315 A  
(MITSUBISHI ELECTRIC CORP), 3. Dezember  
1996**
- **CONG PU ET AL.: "A Methanol Impermeable  
Proton Conducting Composite Electrolyte  
System" J. ELECTROCHEM. SOC., Bd. 142, Nr.  
7, 7. Juli 1995, Seiten I119-I120, XP002900348**

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist. (Art. 99(1) Europäisches Patentübereinkommen).

**EP 1 012 896 B1**

## Beschreibung

[0001] Die Erfindung betrifft eine Brennstoffzelle.

[0002] Eine Brennstoffzelle, z. B. bekannt aus DE 42 41 150 C1, weist eine Kathode, einen Elektrolyten und eine Anode auf. Der Kathode wird ein Oxidationsmittel, z. B. Luft und der Anode wird ein Brennstoff, z. B. Wasserstoff zugeführt. Kathode und Anode einer Brennstoffzelle weisen in der Regel eine durchgehende Porosität auf, damit die beiden Betriebsmittel Oxidationsmittel und Brennstoff den aktiven Bereichen der Elektroden zugeführt und das Produktwasser abgeführt werden können.

[0003] Es gibt sogenannte PEM-Brennstoffzellen, bei denen protonenleitende Membranen als Elektrolyt eingesetzt werden. Die Betriebstemperaturen liegen unterhalb von 130 °C, um die üblicherweise eingesetzte Nafionmembran nicht zu zerstören.

[0004] An der Anode einer PEM-Brennstoffzelle bilden sich in Anwesenheit des Brennstoffs mittels eines Katalysators Wasserstoffionen (Protonen). Die Wasserstoffionen passieren den Elektrolyten und verbinden sich auf der Kathodenseite mit dem vom Oxidationsmittel stammenden Sauerstoff zu Wasser. Elektronen werden dabei freigesetzt und so elektrische Energie erzeugt.

[0005] Weist eine Brennstoffzelle einen alkalischen Elektrolyten auf, so wird das Oxidationsmittel in OH<sup>-</sup> umgewandelt. OH<sup>-</sup>-Ionen passieren dann den Elektrolyten und verbinden sich anschließend mit zugeführtem Wasserstoff zu Wasser. Dabei wird der Wasserstoff ebenfalls oxidiert. Als Katalysator ist dann regelmäßig Nickel vorgesehen. Es wird dabei elektrische Energie freigesetzt.

[0006] Es ist aus DE 195 43 759 bekannt, Brennstoffe wie Methan oder Methanol zunächst extern (d. h. außerhalb der Brennstoffzelle mittels eines Reformierreaktors) oder intern an der Anode der Brennstoffzelle zu reformieren. Durch die Reformierung entsteht der für die Brennstoffzelle benötigte Wasserstoff.

[0007] Die externe Reformierungsreaktion wird beispielsweise durch Kupfer/Zinklegierungen bewirkt.

[0008] Nachteilhaft ist der apparative sowie der regelungstechnische Aufwand bei der externen Reformierung sehr hoch. Auch vermag ein externer Reformierkeinen reinen Wasserstoff zu produzieren. Eine aufwendige Wasserstoffreinigung ist erforderlich. Die für die endotherme Reformierungsreaktion benötigte Energie muß separat bereitgestellt werden. Das System weist eine große Trägheit auf und ist daher für einen dynamischen oder intermittierenden Betrieb ungeeignet.

[0009] Die aus DE 195 43 759 bekannte interne Reformierung, wird unmittelbar in der Brennstoffzelle durchgeführt.

[0010] Nachteilhaft ist diese nur bei sehr hohen Betriebstemperaturen möglich.

[0011] Bei der sogenannten Direkt-Methanol-Brennstoffzelle, z. B. bekannt aus EP 0 068 508 B1, wird Me-

thanol elektrochemisch unmittelbar an der Anode zu Protonen und CO<sub>2</sub> oxidiert. Betriebstemperaturen unterhalb von 130 °C sind möglich.

[0012] Bei Betriebstemperaturen unterhalb von 130 °C läuft die Methanoloxidation nachteilhaft nur sehr langsam ab. Schlechte Wirkungsgrade sind die Folge. Methanol kann ferner durch die üblicherweise verwendeten Elektrolytpolymere (z. B. Nafion) hindurchtreten. Das hindurchgetretene Methanol trägt nicht mehr zur Energieerzeugung bei. Die Kathodenreaktion, nämlich die Sauerstoffreduktion wird ferner durch das hindurchgetretene Methanol gehemmt. Leistungsverluste treten auf.

[0013] Auch ist bei der Direkt-Methanol-Brennstoffzelle darauf zu achten, daß der Elektrolyt nicht mit Methanol chemisch reagiert. Aus diesem Grunde scheidet beispielsweise Phosphorsäure als Elektrolytmaterial aus.

[0014] Eine Kupfer/Zinklegierung kann bei der Direkt-Methanol-Brennstoffzelle regelmäßig nicht eingesetzt werden, da diese elektrochemisch nicht aktiv ist und sich diese regelmäßig nicht mit dem Material des Elektrolyten verträgt.

[0015] Aufgabe der Erfindung ist die Schaffung einer Brennstoffzelle, bei der eine Reformierung des Brennstoffs unmittelbar an der Anode der Brennstoffzelle in gegenüber dem vorgenannten Stand der Technik verbesserter Weise durchgeführt werden kann.

[0016] Die Aufgabe der Erfindung wird durch die anspruchsgemäße Brennstoffzelle gelöst. Vorteilhafte Ausgestaltungen ergeben sich aus den Unteransprüchen.

[0017] Auf der Anodenseite der Brennstoffzelle befindet sich eine Sperrschicht. Die Sperrschicht trennt mit Ausnahme von Wasserstoff die Brennstoffe vom Elektrolyten. Sie ist (praktisch) undurchlässig für Brennstoffe wie Methanol. Die Sperrschicht ist durchlässig für atomaren oder molekularen Wasserstoff.

[0018] Die Sperrschicht besteht z. B. aus einem elektronisch leitfähigen Hydridbildner und zwar insbesondere aus einem metallischen Hydridbildner. Palladium oder Palladium/Silberlegierungen stellen geeignete metallische Hydridbildner dar, um zu einer Sperrschicht im Sinne des Anspruchs zu gelangen.

[0019] Es ist ferner ein Katalysator vorgesehen, der den durch die Sperrschicht hindurchtretenden Wasserstoff oxidiert. Im Fall einer protonendurchlässigen Membran wird der Wasserstoff zu Protonen oxidiert. Im Fall eines alkalischen Elektrolyten wird der Wasserstoff oxidiert und verbindet sich mit OH<sup>-</sup>-Ionen zu Wasser. Weist die Anode beispielsweise ein Edelmetall wie Platin oder eine Edelmetalllegierung auf und ist der Elektrolyt protonenleitend, so wird der Wasserstoff mittels Katalyse zu Protonen oxidiert. Die Anode stellt hier folglich zugleich einen Katalysator dar, der den durch die Sperrschicht hindurchtretenden Wasserstoff zu Protonen oxidiert.

[0020] Brennstoffe wie Methanol sind bei der an-

spruchsgemäßen Vorrichtung von der Elektrolytschicht getrennt. Die bei der Direkt-Methanol-Brennstoffzelle genannten Leistungsverluste (verursacht durch Brennstoffverluste und die gehemmte Kathodenreaktion) werden daher vermieden. Chemische Reaktionen zwischen dem Brennstoff und dem Elektrolytmaterial werden verhindert. Die Elektrolytschicht kann folglich im Unterschied zur Direkt-Methanol-Brennstoffzelle aus den üblichen Feststoffen wie Nafion oder Flüssigkeiten wie Phosphorsäure bestehen. Die Elektrolytschicht kann ferner alkalisch sein.

[0021] In einer weiteren Ausführungsform der Erfindung ist die Sperrschicht elektrisch leitfähig. Sie kann so Anodenfunktionen übernehmen.

[0022] An die Sperrschicht grenzt vorzugsweise unmittelbar ein Mittel zur Reformierung des Brennstoffes. Dieses kann als entsprechend katalytisch aktive Schicht ausgestaltet sein, die auf der Sperrschicht aufgebracht ist. Diese Schicht kann z. B. auf einem hochporösen Hydridbildner aufgebracht sein, so daß die Porenwände mit Reformierkatalysator beschichtet sind. Durch die räumlich enge Verbindung zum Hydridbildner wird Wasserstoff unmittelbar der Reaktionszone entzogen. Hierdurch wird die Reformierungsreaktion beschleunigt.

[0023] Die katalytisch aktive Schicht wird im folgenden reformierende Schicht genannt. Die reformierende Schicht kann aus einer Kupfer/Zinklegierung, Platin oder einer Platin/Rutheniumlegierung bestehen. Pt oder Pt/Ru stellen dann einen Katalysator für die chemische Reaktion dar.

[0024] Die reformierende Schicht ist möglichst dünn auf ihrem Trägermaterial (das zugleich Sperrschichtmaterial sein sollte) aufgebracht, damit der Wasserstoff schnellstmöglich hindurch zum Sperrschichtmaterial diffundieren kann.

[0025] Der durch die Reformierung entstehende Wasserstoff entweicht durch die Sperrschicht. Er wird sozusagen "abgesaugt". Da sich folglich kein Reaktionsgleichgewicht der Reformierungsreaktion einstellen kann, wird die Reformierungsreaktion in Richtung der Produkte beschleunigt. Der Wirkungsgrad wird so verbessert. Die Reaktionstemperatur kann abgesenkt werden.

[0026] Der Beschleunigungseffekt bezüglich der Reformierung und die damit einhergehende Temperaturabsenkung ist maximal, wenn die Sperrschicht zugleich die Anode ist und der Katalysator für die Reformierungsreaktion unmittelbar auf der Sperrschicht aufgebracht ist.

[0027] Vorteilhaft weist die Sperrschicht ein hohes Lösungsvermögen für Wasserstoff auf. Der bei der Reformierung entstehende Wasserstoff wird so besonders schnell abgezogen. Palladiumlegierungen, z. B. Pd-Ag-Legierungen, insbesondere die mit einem Atomverhältnis Pd:Ag = 75:25, weisen ein hohes Lösungsvermögen für Wasserstoff im Sinne der Erfindung auf.

[0028] Vorteilhaft weist die Sperrschicht aufgeraute Oberflächen auf. Durch eine hohe Rauigkeit wird zum

einen auf der Seite der Reformierschicht die wirksame Oberfläche für die Reformierungsreaktion vergrößert. Zum anderen wird auf der Seite des Elektrolyten das Desorptionsvermögen und die Oxidation des gelösten Wasserstoffs verbessert. Zudem wird durch die Rauigkeit die Haftung sowohl eines ionenleitenden Polymers als auch der äußeren reformierenden Schicht verbessert.

[0029] Die Rauigkeit kann z.B. durch elektrochemische Abscheidung von Palladium auf eine dünne Pd-Ag-Folie erreicht werden.

[0030] Die reformierende Schicht ist regelmäßig porös, um die katalytisch aktive Oberfläche zu vergrößern. Auch gelangt der entstehende Wasserstoff durch die Poren hindurch zur bzw. in die Sperrschicht.

[0031] Figur 1 verdeutlicht den Aufbau der erfindungsgemäßen Brennstoffzelle. Diese besteht aus einem Schichtsystem mit einer porösen Kathodenschicht 1, einer protonenleitenden Elektrolytschicht 2, einer Anode 3, einer Sperrschicht 4 und einer reformierenden Schicht 5. Die Anode stellt hier zugleich den anspruchsgemäßen Katalysator dar, der den durch die Sperrschicht hindurchtretenden Wasserstoff zu Protonen oxidiert.

[0032]  $\text{CH}_3\text{OH}$  gelangt zusammen mit  $\text{H}_2\text{O}$  zur reformierenden Schicht 5. Die Reformierungsreaktion findet daraufhin an der reformierenden Schicht 5 statt. Der resultierende Wasserstoff passiert die reformierende Schicht 5 und diffundiert durch die Sperrschicht 4 hindurch zur Anode 3. Als Abfallprodukt entsteht dabei  $\text{CO}_2$ . Dieses entweicht. An der Anode 3 wird der Wasserstoff zu Protonen oxidiert. Die Protonen passieren die Elektrolytschicht 2 und gelangen so zur Kathode 1. Sauerstoff wird der Kathode 1 zugeführt und verbindet sich mit den Protonen zu Wasser. Ein elektrischer Strom wird so erzeugt.

## Patentansprüche

1. Brennstoffzelle, bestehend aus Anode, Elektrolyt, Kathode sowie aus einer Sperrschicht, mit den Merkmalen:

- a) die Sperrschicht befindet sich auf der Anodenseite der Brennstoffzelle,
- b) die Sperrschicht trennt Brennstoffe vom Elektrolyten,
- c) die Sperrschicht ist durchlässig für atomaren oder molekularen Wasserstoff,
- d) die Sperrschicht weist nur auf der vom Elektrolyten abgewandten Seite einen Reformierungskatalysator zur Reformierung des Brennstoffs aus der Gruppe Kupfer/Zinklegierung, Platin oder Platin/Rutheniumlegierung auf.

2. Brennstoffzelle nach vorhergehendem Anspruch, dadurch gekennzeichnet,

daß die Sperrschicht zugleich die Anode ist.

3. Verwendung der Brennstoffzelle nach einem der vorhergehenden Ansprüche zur Verstromung von Methanol. 5

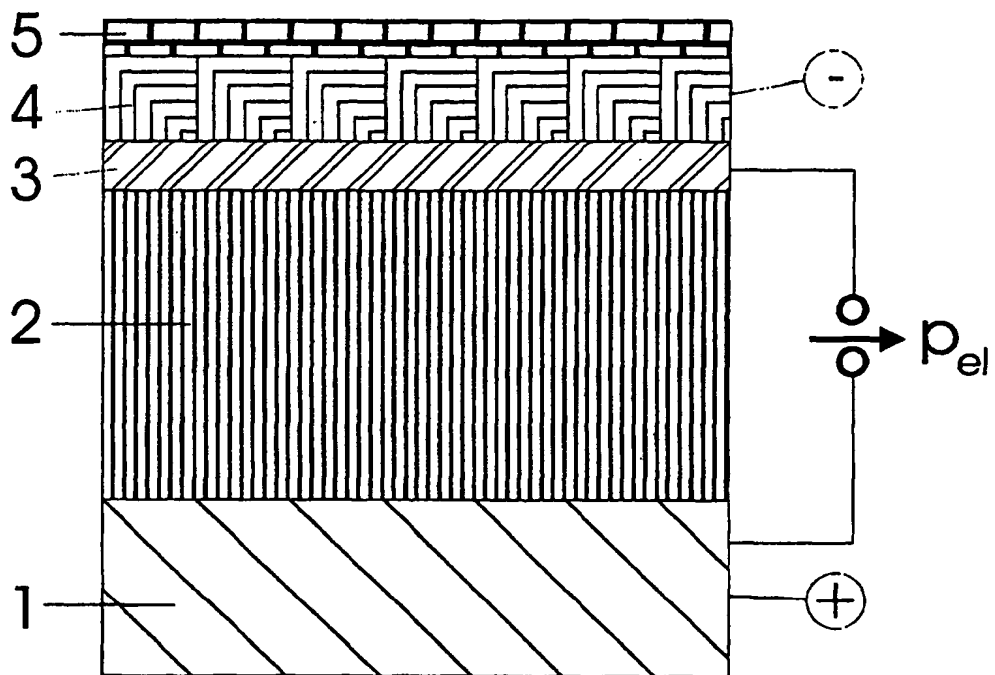
#### Claims

1. Fuel cell comprising anode, electrolyte and cathode together with a barrier layer, with the features: 10
  - a) the barrier layer is on the anode side of the fuel cell,
  - b) the barrier layer separates fuels from the electrolyte, 15
  - c) the barrier layer is permeable to atomic or molecular hydrogen,
  - d) the barrier layer has, only on the side facing away from the electrolyte, a reforming catalyst 20 from the group of copper/zinc alloy, platinum or platinum/ruthenium alloy for reforming the fuel.
2. Fuel cell according to the preceding claim, **characterised in that** the barrier layer is also the anode. 25
3. Application of the fuel cell according to one of the preceding claims for direct transformation of methanol into current. 30

#### Revendications

1. Pile à combustible constituée d'une anode, d'un électrolyte, d'une cathode, ainsi que d'une couche d'arrêt ayant les caractéristiques : 35
  - a) la couche d'arrêt se trouve du côté anodique de la pile à combustible,
  - b) la couche d'arrêt sépare des combustibles de l'électrolyte, 40
  - c) la couche d'arrêt est perméable à de l'hydrogène atomique ou moléculaire,
  - d) la couche d'arrêt ne comporte que sur le côté éloigné de l'électrolyte un catalyseur de reformage du combustible, choisi dans le groupe 45 d'un alliage de cuivre et de zinc, du platine ou d'un alliage du platine et du ruthénium.
2. Pile à combustible suivant la revendication précédente, **caractérisée en ce que** la couche d'arrêt est en même temps l'anode. 50
3. Utilisation de la pile à combustible suivant l'une des revendications précédentes, pour transformer du méthanol en courant électrique. 55





Figur 1